

(12)特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関  
国際事務局



(43) 国際公開日  
2002 年 2 月 28 日 (28.02.2002)

PCT

(10) 国際公開番号  
WO 02/16498 A1

- (51) 国際特許分類<sup>7</sup>: C08L 69/00 至 (KAWATO, Hiroshi) [JP/JP]. 久世茂樹 (KUZE, Shigeki) [JP/JP]; 〒299-0107 千葉県市原市姉崎海岸1番地1 Chiba (JP).
- (21) 国際出願番号: PCT/JP01/06866
- (22) 国際出願日: 2001 年 8 月 9 日 (09.08.2001) (74) 代理人: 弁理士 片岡 誠 (KATAOKA, Makoto); 〒299-0107 千葉県市原市姉崎海岸24番地4 出光興産株式会社 知的財産センター Chiba (JP).
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語 (81) 指定国 (国内): CN, KR, US.
- (30) 優先権データ: 特願2000-248413 2000 年 8 月 18 日 (18.08.2000) JP (84) 指定国 (広域): ヨーロッパ特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, TR).
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 出光石油化学株式会社 (IDEMITSU PETROCHEMICAL CO., LTD.) [JP/JP]; 〒130-0015 東京都墨田区横網一丁目6番1号 Tokyo (JP). 添付公開書類: 国際調査報告書
- (72) 発明者; および 2 文字コード及び他の略語については、定期発行される各 PCT ガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 川 東 宏

(54) Title: AROMATIC POLYCARBONATE RESIN COMPOSITION AND MOLDINGS

(54) 発明の名称: 芳香族ポリカーボネート樹脂組成物および成形品

(57) Abstract: An aromatic polycarbonate resin composition which comprises 100 parts by mass of an aromatic polycarbonate resin and 0.001 to 1 parts by mass of another thermoplastic resin having a refractive index which differs from that of the polycarbonate resin by 0.001 or more, and exhibits a ratio (X)/(Y) of 0.5 or more, wherein (X) and (Y) represent light transmittances at wave lengths of 320 nm and 633 nm, respectively, as measured with a sample plate having a thickness of 2 mm. The aromatic polycarbonate resin composition can be used for producing moldings having a transparency comparable to that of acrylic resin moldings for optical use without detriment to the excellent resistance to impact and heat being inherent in a polycarbonate resin.

(57) 要約:

芳香族ポリカーボネート樹脂 100 質量部および芳香族ポリカーボネート樹脂との屈折率の差が 0.001 以上である他の熱可塑性樹脂 0.001 ~ 1 質量部からなり、厚み 2 mm の試料板で測定した波長 320 nm における分光光線透過率 (X) と波長 633 nm における分光光線透過率 (Y) との比 (X) / (Y) が 0.5 以上である芳香族ポリカーボネート樹脂組成物。芳香族ポリカーボネート樹脂の更なる透明化において、光学用途向けのアクリル系樹脂に匹敵する透明性を有する成形品を耐衝撃性、耐熱性を低下させることなく得ることができる芳香族ポリカーボネート樹脂組成物を提供する。



WO 02/16498 A1

## 明 細 書

芳香族ポリカーボネート樹脂組成物および成形品

### 技術分野

本発明は芳香族ポリカーボネート樹脂組成物および成形品に関し、詳しくは、透明性にすぐれ、光学レンズ、導光板（導光体）などの光学素子、あるいは、表示パネルや照明用のカバー、ガラス代替用途などに好適に用いることができる芳香族ポリカーボネート樹脂組成物および成形品に関する。

### 背景技術

芳香族ポリカーボネート樹脂は、すぐれた耐衝撃特性、耐熱性、電気的特性、透明性を有するため、各種分野に用いられている。中でも、そのすぐれた透明性のために、光学レンズ、導光板（導光体）などの光学素子、光学的情報記録媒体、あるいは表示パネルや照明用カバー、ガラス代替用途など多方面に用いられている。しかしながら、用途によっては、芳香族ポリカーボネート樹脂の透明性では十分でない場合がある。

たとえば、液晶表示画面のバック照明用、各種誘導灯のバック照明用として、均一発光する面光源として透明板状成形品が組み込まれている。この透明板状成形品は、光源である冷陰極管（蛍光灯）からの光を受けて面発光する、すなわち導光板である。この導光板は、光の減衰が少ない材質であることが必要であり、また軽量で加工性にすぐれたものが望まれている。

これらの観点から、従来は、熱可塑性樹脂の中で、ポリメチルメタアクリレート（PMMA）が最も適した材料として用いられている。このPMMAの全平行光線透過率は91～93%と高いレベルにあり、すぐれた透明性を有し、透明性、加工性からは非常に優れた樹脂であ

る。しかしながら、PMMAは、耐熱性、耐衝撃性、難燃性などが必ずしも十分でなく、導光板、表示パネル、照明用カバーなどにおいて使用環境が制限されるという問題点がある。

したがって、たとえば、自動車搭載用のインストルメントパネル、テールランプ、ウィンカーなどのバック照明用の導光板としては、120℃以上の熱変形温度、10J以上の落錐衝撃強度の要求特性に適合する必要がある、PMMAを用いることができない場合がある。

芳香族ポリカーボネート樹脂は、耐熱性、耐衝撃性の点では問題なく使用可能であるが、透明性のレベルがPMMAに及ばない。したがって、導光板などをはじめとする光学的用途のために、透明性のレベルの改良が望まれている。

芳香族ポリカーボネート樹脂と透明性のより高いアクリル系樹脂を混合してなる組成物が種々提案されている。ポリカーボネートとポリメチルメタアクリレートからなる樹脂組成物は、一般的には均一な透明樹脂とはならず、真珠光沢を有する不透明な特殊樹脂として開発されてきた。その後、両樹脂の特長を生かした、透明性樹脂の開発がなされてきた。

たとえば、①特公昭56-28937号公報には、ポリカーボネートと75～90質量%メチルメタアクリレート及び10～25質量%アルキルアクリレートからなる低分子量のアクリル共重合体の組成物が開示されている。しかし、組成物が透明になるには、アクリル共重合体の分子量が15000以下であることが必要であり、このアクリル系共重合体は可塑剤としての効果であり、ポリカーボネート樹脂のすぐれた物性が大幅に低下する問題がある。また、透光率は、アクリル共重合体の添加によって影響することはないが、改善されるわけではない。

②特開昭 63-90551 号公報、特開昭 63-256647 号公報、特開昭 64-1749 号公報には、メチルメタアクリレートと、モノ置換（メタ）アクリルアミド、マレインイミド、炭素環状基を有する（メタ）アクリレートからなる共重合体がポリカーボネートと透明に相溶することが開示されている。しかし、フィルム状では透明であるものの、数 mm の成形品では不透明であり、光学的素材、導光板などへの適用はできないものである。

これらの問題点の改良組成物として、③特開平 4-359953 号公報、特開平 4-359954 号公報には、芳香族ポリカーボネートとメタクリレート系共重合体の組成物において、メタクリレート系共重合体がフエニルメタアクリレート単位を 50 質量%以上含む共重合体からなる組成物が開示されている。しかしながら、それぞれの実施例、比較例から明らかなように、メタアクリレート系共重合体を 3 質量%配合してなる組成物からなる 2 mm シートの、透明性の指標であるヘーズ (%) は、ポリカーボネートの 4 % に対して、5 ~ 8 % であり、ポリカーボネート樹脂の透明性は逆に悪化しているのが実情である。

このように、ポリカーボネート樹脂の本来有する透明性に、より透明性のすぐれたアクリル系樹脂を配合したのみでは、透明性の本質的な改善は困難である。

④特開平 10-73725 号公報、特開平 10-158364 号公報には、ポリカーボネート樹脂 100 質量部とアクリル系樹脂 0.001 ~ 1 質量部からなる良導光性ポリカーボネート樹脂組成物、特にアクリル系樹脂の分子量が 200 ~ 100,000 であることが開示されている。この方法は、アクリル系樹脂の配合量が 1 質量部以下である点で従来の組成物とは、その思想を異にするとともに、導光性に

もすぐれたものであり、アクリル系樹脂を0.2質量部の含有によって、アクリル系樹脂に匹敵する導光性を有し、しかもポリカーボネート樹脂としての高い耐衝撃性、耐熱性を保持しているすぐれた組成物である。

しかしながら、光学素子分野をはじめとして、ポリカーボネート樹脂の透明性の改良の要望がより高くなっている。前記④の組成物は、一般グレードとしてのアクリル系樹脂に匹敵する透明性、導光性はほぼ達成されているものの、光学用途としての高透明アクリル系樹脂には、未だ及ばないものであった。

本発明は、上記現状の下、芳香族ポリカーボネート樹脂の更なる透明化において、光学用途向けのアクリル系樹脂に匹敵する透明性を有し、芳香族ポリカーボネート樹脂の特長である耐衝撃性、耐熱性を低下させることのない成形品を得ることができるポリカーボネート樹脂組成物および成形品の提供を目的とする。

#### 発明の開示

本発明者らは、芳香族ポリカーボネート樹脂の透明性と分光光線透過率との関係について鋭意検討した。その結果、特定の少量の他の熱可塑性樹脂を配合してなる組成物の分散状態を制御した場合に、芳香族ポリカーボネート樹脂の分光光線透過率、すなわち光吸収パターンが変化し、これが透明性の向上に大きく寄与することを見だし、本発明を完成した。

すなわち、本発明は、

(1) 芳香族ポリカーボネート樹脂100質量部および芳香族ポリカーボネート樹脂との屈折率の差が0.001以上である他の熱可塑性樹脂0.001～1質量部からなり、厚み2mmの試料板で測定した波長320nmにおける分光光線透過率(X)と波長633nmに

における分光光線透過率（Y）との比（X）／（Y）が0.5以上である芳香族ポリカーボネート樹脂組成物。

（2） 他の熱可塑性樹脂がアクリル系樹脂である（1）記載の芳香族ポリカーボネート樹脂組成物。

（3） 芳香族ポリカーボネート樹脂100質量部に対して、リン系酸化防止剤を0.005～0.2質量部含有する（1）または（2）に記載の芳香族ポリカーボネート樹脂組成物。

（4） リン系酸化防止剤がペンタエリスリトール系である（3）記載の芳香族ポリカーボネート樹脂組成物。

（5） リン系酸化防止剤がビス（2，6-ジ-tert-ブチル-4-メチルフェニル）ペンタエリスリトールホスファイトである（4）記載の芳香族ポリカーボネート樹脂組成物。

（6） 芳香族ポリカーボネート樹脂100質量部に対して、官能基含有シリコン化合物および／または脂環式エポキシ化合物を0.01～2質量部含有する（1）～（5）のいずれかに記載の芳香族ポリカーボネート樹脂組成物。

（7） （1）～（6）のいずれかに記載の芳香族ポリカーボネート樹脂組成物からなる透明成形品。

（8） （1）～（6）のいずれかに記載の芳香族ポリカーボネート樹脂組成物からなる導光体を提供するものである。

#### 発明を実施するための最良の形態

以下、本発明を詳細に説明する。

本発明は、芳香族ポリカーボネート樹脂100質量部および芳香族ポリカーボネート樹脂との屈折率の差が0.001以上である他の熱可塑性樹脂0.001～1質量部からなり、厚み2mmの試料板で測定した波長320nmにおける分光光線透過率（X）と波長633nm

mにおける分光光線透過率（Y）との比（X）／（Y）が0.5以上である芳香族ポリカーボネート樹脂組成物および成形品を提供するものである。

芳香族ポリカーボネート樹脂の光学的特性である全平行光線透過率、ヘーズ（かすみ度）、分光光線透過率は、測定試験片の厚みに大きく依存することが知られている。また、分光光線透過率は、波長290～400nm（試験片厚み：0.1～5mm）において急激に変化することが知られている。この光学的特性は芳香族ポリカーボネート樹脂の分子構造に由来しており、この光学的特性を改良することは不可能と考えられていた。

しかしながら、本発明者らの検討において、この分光光線透過率特性の改良された芳香族ポリカーボネート樹脂組成物が得られることが明らかとなった。このことは、全く新しい事実である。この改良された芳香族ポリカーボネート樹脂組成物は、たとえば、芳香族ポリカーボネート樹脂に屈折率の異なる少量の他の熱可塑性樹脂を配合するとともに、その分散条件を制御することによって得ることができるものである。

本発明の芳香族ポリカーボネート樹脂組成物における主成分である芳香族ポリカーボネート樹脂は、特に制限なく種々のものが挙げられ二価フェノールとカーボネート前駆体との反応により製造される。すなわち、二価フェノールとカーボネート前駆体とを溶液法あるいは熔融法、すなわち、二価フェノールとホスゲンの反応、二価フェノールとジフェニルカーボネートなどとのエステル交換法により反応させて製造されたものである。

二価フェノールとしては、様々なものが挙げられるが、特に2,2-ビス（4-ヒドロキシフェニル）プロパン〔ビスフェノールA〕、

ビス（４－ヒドロキシフェニル）メタン、１，１－ビス（４－ヒドロキシフェニル）エタン、２，２－ビス（４－ヒドロキシ－３，５－ジメチルフェニル）プロパン、４，４’－ジヒドロキシジフェニル、ビス（４－ヒドロキシフェニル）シクロアルカン、ビス（４－ヒドロキシフェニル）オキシド、ビス（４－ヒドロキシフェニル）スルフィド、ビス（４－ヒドロキシフェニル）スルホン、ビス（４－ヒドロキシフェニル）スルホキシド、ビス（４－ヒドロキシフェニル）エーテル、ビス（４－ヒドロキシフェニル）ケトンなどが挙げられる。

特に好ましい二価フェノールとしては、ビス（ヒドロキシフェニル）アルカン系、特にビスフェノールＡを主原料としたものである。また、カーボネート前駆体としては、カルボニルハライド、カルボニルエステル、またはハロホルメートなどであり、具体的にはホスゲン、二価フェノールのジハロホルメート、ジフェニルカーボネート、ジメチルカーボネート、ジエチルカーボネートなどである。

なお、芳香族ポリカーボネート樹脂は、分岐構造を有していてもよく、分岐剤としては、１，１，１－トリス（４－ヒドロキシフェニル）エタン、 $\alpha$ ， $\alpha'$ ， $\alpha''$ －トリス（４－ヒドロキシフェニル）－１，３，５－トリイソプロピルベンゼン、フロログリシン、トリメリット酸、イサチンビス（*o*－クレゾール）などがある。また、分子量の調節のためには、フェノール、*p*－*t*－ブチルフェノール、*p*－*t*－オクチルフェノール、*p*－クミルフェノール、*p*－ドデシルフェノールなどが用いられる。

本発明に用いられる芳香族ポリカーボネート樹脂の粘度平均分子量は通常１０，０００～１００，０００、好ましくは１１，０００～４０，０００、特に好ましくは１２，０００～３０，０００である。ここで、これらの粘度平均分子量（ $M_v$ ）は、ウベローデ型粘度計を用



いて、20℃における塩化メチレン溶液の粘度を測定し、これより極限粘度  $[\eta]$  を求め、次式にて算出するものである。

$$[\eta] = 1.23 \times 10^{-5} M v^{0.83}$$

本発明の芳香族ポリカーボネート樹脂組成物は、前記の分光光線透過率特性を有するものである。このような分光光線透過率特性を有する芳香族ポリカーボネート樹脂組成物は、具体的には、芳香族ポリカーボネート樹脂100質量部および芳香族ポリカーボネート樹脂との屈折率（ビスフェノールAポリカーボネート樹脂の屈折率は1.590）の差が0.001以上である他の熱可塑性樹脂0.001～1質量部からなる組成物において、他の熱可塑性樹脂の分散状態を制御することによって得ることができる。すなわち、芳香族ポリカーボネート樹脂組成物の中でも、前記分光光線透過率特性を満足させるためには、ごく少量配合される他の熱可塑性樹脂が成形品中に微分散されることが重要である。

ここで芳香族ポリカーボネート樹脂と屈折率の差が0.001以上、好ましくは0.01～0.2である他の熱可塑性樹脂としては、特に制限はないが、好ましくはアクリル系樹脂が挙げられる。ここでアクリル系樹脂としては、アクリル酸、アクリル酸エステル、アクリロニトリルおよびその誘導体から選ばれたモノマー単位を繰り返し単位とする樹脂であり、単独重合体またはスチレン、ブタジエンなどとの共重合体が挙げられる。

具体的には、ポリアクリル酸、ポリメタクリル酸メチル（PMMA）、ポリアクリロニトリル、ポリアクリル酸エチル、ポリアクリル酸-2-クロロエチル共重合体、アクリル酸-n-ブチル-アクリロニトリル共重合体、アクリロニトリル-スチレン共重合体、アクリロニトリル-ブタジエン共重合体、アクリロニトリル-ブタジエン-スチ

レン共重合体などである。これらの中でも、特に、ポリメタクリル酸メチル（PMMA）が好適に用いられる。さらに、アクリル系樹脂としては、分子量が200～10万、特に1万～6万程度の樹脂が好適に用いられる。

本発明の芳香族ポリカーボネート樹脂組成物は、たとえば芳香族ポリカーボネート樹脂100質量部とアクリル系樹脂0.001～1質量部、好ましくは0.05～0.5質量部、より好ましくは0.1～0.3質量部からなる。

本発明の芳香族ポリカーボネート樹脂組成物は、例えば、芳香族ポリカーボネート樹脂（たとえば、ビスフェノールAポリカーボネート樹脂）100質量部とアクリル系樹脂、たとえばポリメチルメタアクリレート（PMMA）0.001～1質量部を含む成形原料を熔融混練成形することによって得ることができる。

この熔融成形に用いる成形原料としては、特に制限はなく、ペレット状、粉体状、フレーク状などの芳香族ポリカーボネート樹脂、アクリル系樹脂をドライブレンドしたもの、あるいは芳香族ポリカーボネート樹脂にアクリル系樹脂を比較的高濃度に熔融ブレンドして得たマスターバッチと芳香族ポリカーボネート樹脂とのドライブレンド物とすることもできる。また、芳香族ポリカーボネート樹脂とアクリル系樹脂を塩化メチレン、塩化エチレンなどの溶媒を用いて溶液ブレンドすることもできる。この場合、芳香族ポリカーボネート樹脂に対して高濃度のアクリル系樹脂を溶液ブレンドして、アクリル系樹脂の分散性の良好な芳香族ポリカーボネート樹脂マスター原料と芳香族ポリカーボネート樹脂を熔融混練成形することにより、通常ペレット状の成形原料とされる。

本発明の芳香族ポリカーボネート樹脂組成物は、組成物（成形品）

中におけるアクリル系樹脂の分散状態が、その原因は必ずしも明らかではないが、顕微鏡的に明確に分離した粒子状で観察されないような状態に制御された場合に本発明の分光光線透過率特性を有するようである。

たとえば、溶融混練条件として、アクリル系樹脂が芳香族ポリカーボネート樹脂中に溶融状態で十分に分散する混練条件、したがって比較的剪断力の高い混練条件の選定が必要となる。なお、芳香族ポリカーボネート樹脂は、比較的溶融粘度の高い樹脂であり、アクリル系樹脂との溶融混練において、アクリル系樹脂の分散性を高める剪断条件は、芳香族ポリカーボネート樹脂の熱劣化による着色、ひいては分光光線透過率の低下という悪影響を考慮して、適度な溶融混練機、混練条件の選定が重要となる。

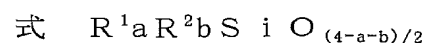
本発明の芳香族ポリカーボネート樹脂組成物は、本発明の分光光線透過率特性を特に損なわない範囲で各種添加剤を含有することができる。たとえば、酸化防止剤としては、亜リン酸エステル、リン酸エステルなどのリン系酸化防止安定剤が好ましく用いられる。亜リン酸エステルとしては、たとえば、トリフェニルホスファイト、トリスノニルフェニルホスファイト、トリス（２，４－ジ－*tert*－ブチルフェニル）ホスファイト、トリノリルホスファイト、トリデシルホスファイト、トリオクチルホスファイト、トリオクタデシルホスファイト、ジステアリルペンタエリスリトールジホスファイト、トリシクロヘキシルホスファイト、モノブチルジフェニルホスファイト、モノオクチルジフェニルホスファイト、ジステアリルペンタエリスリトールジホスファイト、ビス（２，４－ジ－*tert*－ブチルフェニル）ペンタエリスリトールホスファイト、ビス（２，６－ジ－*tert*－ブチル－４－メチルフェニル）ペンタエリスリトールホスファイト、２，２

ーメチレンビス（４，６－ジ－*tert*－ブチルフェニル）オクチルホスファイト、テトラキス（２，４－ジ－*tert*－ブチルフェニル）－４，４－ジフェニレンホスフォナイトなどの亜リン酸のトリエステル、ジエステル、モノエステルなどが挙げられる。

リン酸エステルとしては、トリメチルホスフェート、トリエチルホスフェート、トリブチルホスフェート、トリオクチルホスフェート、トリフェニルホスフェート、トリクレジルホスフェート、トリス（ノニルフェニル）ホスフェート、２－エチルフェニルジフェニルホスフェートなどが挙げられる。これらリン系酸化防止剤は単独で用いてもよく、二種以上を組み合わせ用いてもよい。

これらのリン系酸化防止剤の中でも、ジステアリルペンタエリスリトールジホスファイト、ビス（２，４－ジ－*tert*－ブチルフェニル）ペンタエリスリトールホスファイト、ビス（２，６－ジ－*tert*－ブチル－４－メチルフェニル）ペンタエリスリトールホスファイト、トリス（２，４－ジ－*tert*－ブチルフェニル）ホスファイトが好ましく、ペンタエリスリトール系、中でもビス（２，６－ジ－*tert*－ブチル－４－メチルフェニル）ペンタエリスリトールホスファイトが特に好ましい。

これらリン系酸化防止剤の含有量は、芳香族ポリカーボネート樹脂１００質量部に対して、０．００５～０．２重量部、好ましくは０．０１～０．１質量部である。さらに、本発明の芳香族ポリカーボネート樹脂は、官能基含有シリコン化合物、脂環式エポキシ化合物を含有することもできる。ここで、官能基含有シリコン化合物としては官能基を有する（ポリ）オルガノシロキサン類であり、その骨格としては、



〔式中、 $R^1$  は官能基含有基、 $R^2$  は炭素数 1 ～ 12 の炭化水素基、 $a$  および  $b$  は、 $0 < a \leq 3$ 、 $0 \leq b < 3$ 、 $0 < a + b \leq 3$ 〕で表される基本構造を有する重合体、共重合体である。また、官能基としては、アルコキシ基、アリアルオキシ基、ポリオキシアルキレン基、水素基、水酸基、カルボキシル基、シアノール基、アミノ基、メルカプト基、エポキシ基などを含有するものである。

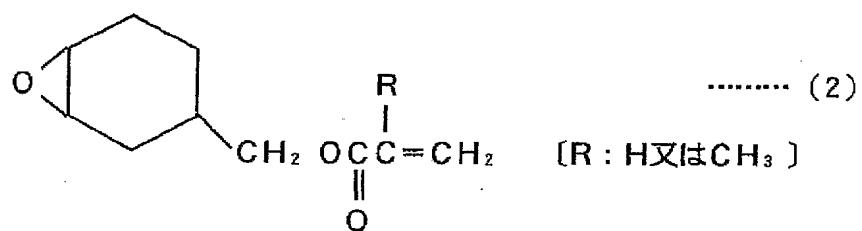
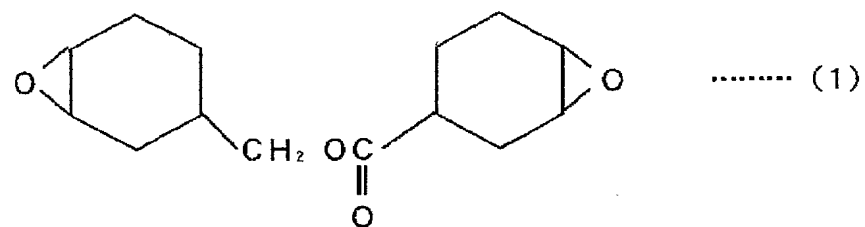
これら官能基としては、複数の官能基を有するシリコン化合物、異なる官能基を有するシリコン化合物を併用することもできる。この官能基を有するシリコン化合物は、その官能基 ( $R^1$ ) / 炭化水素基 ( $R^2$ ) が、通常 0.1 ～ 3、好ましくは 0.3 ～ 2 程度のものである。

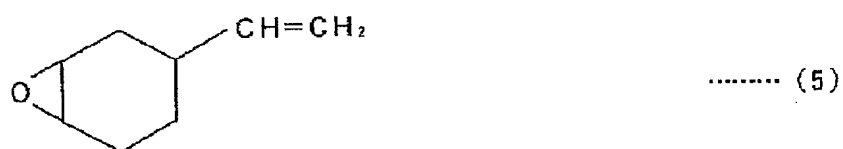
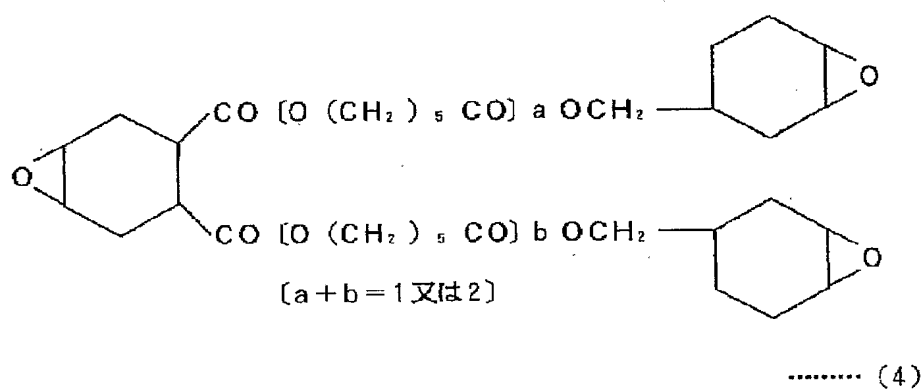
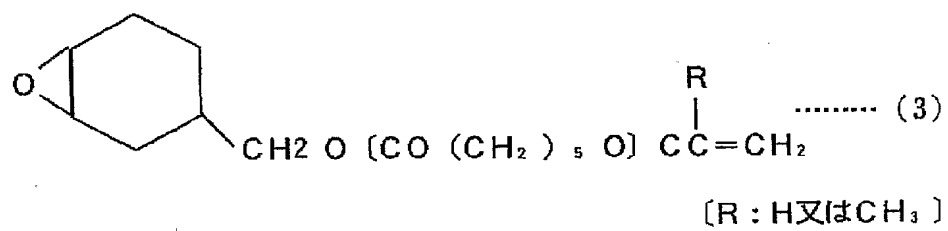
これらシリコン化合物は液状物、パウダーなどであるが、溶融混練において分散性の良好なものが好ましい。たとえば、室温での動粘度が 10 ～ 500, 000  $\text{mm}^2/\text{s}$  程度の液状のものを例示できる。このようにシリコン化合物が液状であっても、成形品に均一に分散するとともに、成形時や成形品の表面にブリードすることが少ない大きな特長がある。

この官能基含有シリコン化合物は、芳香族ポリカーボネート樹脂 100 質量部に対して、0.01 ～ 2.0 質量部、好ましくは 0.05 ～ 1.0 質量部含有することができる。ここで、0.01 質量部未満では、熱安定性の改良による光学的特性への改善効果見られず、2.0 質量部を超えると光学的特性が低下する恐れがある。

また、脂環式エポキシ化合物としては、脂環式エポキシ基、すなわち、脂肪族環内のエチレン結合に酸素 1 原子が付加したエポキシ基を持つ環状脂肪族化合物である。これらの脂環式エポキシ化合物としては、具体的には、1, 2-エポキシシクロヘキサン、1, 4-エポキ

シシクロヘキサン、1-メチル-1,2-エポキシシシクロヘキサン、  
1,3-ジメチル-1,2-エポキシシシクロヘキサン、1-メトキシ-  
1,2-エポキシシシクロヘキサン、1,4-エポキシ-2-シクロ  
ヘキサン、あるいは下記式(1)～(5)に示す化合物などが挙げら  
れる。





これらの脂環式エポキシ化合物は、芳香族ポリカーボネート樹脂 100 質量部に対して、0.01～1.0 質量部、好ましくは 0.02～0.5 質量部含有することができる。ここで、0.01 質量部未満では、耐加水分解性効果が少なく、光学的特性への改善効果が見られず、1.0 質量部を超えると光学的特性が低下する恐れがある。

本発明の芳香族ポリカーボネート樹脂組成物には、前記の各成分の他に必要に応じて、本発明の効果を特に損なわない範囲において各種添加剤を含有してもよい。たとえば、ヒンダードフェノール系、アミン系などの酸化防止剤、ベンゾトリアゾール系、ベンゾフェノン系などの紫外線吸収剤、ヒンダードアミン系などの光安定剤、脂肪族カルボン酸エステル系、パラフィン系、シリコーンオイル系、ポリエチレンワックスなどの内部潤滑剤、帯電防止剤、着色剤、離型剤、難燃剤などが挙げられる。

次に、本発明の芳香族ポリカーボネート樹脂組成物および成形品の製造方法の一例について説明する。本発明の芳香族ポリカーボネート樹脂組成物は、芳香族ポリカーボネート樹脂および PMMA などからなる成形原料をリボンプレンダー、ドラムタンブラー、ヘンシェルミキサーなどでドライブレンドし、単軸スクリュウ押出成形機、2 軸スクリュウ押出成形機、多軸スクリュウ押出成形機などを用いて、通常組成物ペレットを製造し、このペレットを用いて各種成形品が製造される。このペレット製造時の熔融混練の条件は、シリンダー温度 230～280℃の範囲が適切である。ここで、230℃未満であると熔融不良によるアクリル系樹脂の分散不良とともに、高剪断による樹脂の焼けによる黄変を誘発し好ましくない。また、280℃を超えると高温、樹脂焼けにより黄変を誘発し好ましくない。また、アクリル系樹脂の分散性を確保するためにあるレベル以上の剪断力を確保するた



めに、押出成形機の圧縮比、スクリーデザイン、スクリー径、スクリーの回転数などとともに、成形温度などの条件選定が必要である。

ついで、通常、このペレットを用いて、射出成形、押出成形など、特に射出成形により成形品が製造される。ここで、射出成形による成形品の製造では、シリンダー温度は通常  $260 \sim 320^{\circ}\text{C}$  の範囲に設定される。この温度は、成形品の厚み、成形品の大きさ、すなわち樹脂の熔融流動長さに応じて適宜設定される。また、金型温度は  $50 \sim 120^{\circ}\text{C}$  の条件が好ましい。ここで、 $50^{\circ}\text{C}$  未満であると金型転写性が低下し、 $120^{\circ}\text{C}$  を超えると芳香族ポリカーボネート樹脂／PMM A などの樹脂の相分離が激しくなり透明性が低下する傾向になり好ましくない。

本発明の透明成形品としては、特に制限はなく、例えば、その用途によって適宜選定される。平板状、曲板状、楔状、碗状、容器状、任意形状などがある。本発明の芳香族ポリカーボネート樹脂組成物および成形品は、厚み  $2\text{ mm}$  の試料板で測定した波長  $320\text{ nm}$  における分光光線透過率 (X) と波長  $633\text{ nm}$  における分光光線透過率 (Y) との比 (X) / (Y) が  $0.5$  以上、好ましくは  $0.55$  以上である。ここで、分光光線透過率を測定する厚み  $2\text{ mm}$  の試料板の成形は、前記のように、成形温度  $260 \sim 320^{\circ}\text{C}$  の範囲で芳香族ポリカーボネート樹脂の分子量に対応した温度、成形金型温度は  $60 \sim 110^{\circ}\text{C}$  程度の条件で射出成形される。

本発明の芳香族ポリカーボネート樹脂組成物は、芳香族ポリカーボネート樹脂の特長である耐衝撃性、耐熱性を低下させることなく、光線透過率を向上させることを可能にするものである。

本発明の芳香族ポリカーボネート樹脂組成物は、従来の芳香族ポリ

カーボネート樹脂組成物とは著しく異なる分光光線透過率を有し、光学用途に用いられているPMMAに匹敵する全光線透過率を有している。したがって、光学レンズ、導光板など光学素子、ガラス代替用としての各種照明カバー、表示パネルなどに用いられる。

次に、本発明を実施例及び比較例によりさらに具体的に説明するが、本発明はこれらの例によってなんら限定されるものではない。

#### 実施例1～3および比較例1～2

第1表に示す割合で各成分を配合〔質量部〕し、スクリーン押出成形機で熔融混練しペレットを製造した。ついで、得られたペレットを、120℃で12時間乾燥した後、成形温度300℃、金型温度100℃の成形条件で射出成形して分光光線透過率測定用試料板〔140mm×140mm×厚み2mm〕、全光線透過率測定用試料板〔70mm×70mm×厚み3mm〕および他の物性測定用試験片を得た。得られた成形板、試験片を用いて光学的特性、耐熱性、耐衝撃性を測定した。測定結果を第1表に示した。

なお、用いた成形材料、ペレット製造条件および性能評価方法を次に示す。

##### 1. 成形材料

###### (A) 芳香族ポリカーボネート樹脂

・タフロン FN1700A（出光石油化学株式会社製）：ビスフェノールAポリカーボネート樹脂、粘度平均分子量：18,000、屈折率：1.590

###### (B) ポリメチルメタアクリレート（PMMA）

・ダイアナルBR87（三菱レイヨン（株）製）、分子量：25,000、屈折率：1.490

分子量は、オストワルド型粘度管にて、25℃におけるクロロホル

ム溶液の極限粘度  $[\eta]$  を測定し、以下の関係式により平均重合度  $P_A$  を求め、計算した。

$$\log P_A = 1.613 \log ([\eta] \times 10^4 / 8.29)$$

(C) リン系酸化防止剤

- ・イルガホス 168 (チバ・スペシャルティ・ケミカルズ社製) : トリス (2, 4-ジ-tert-ブチルフェニル) ホスファイト
- ・アデガスタブ PEP-36 (旭電化 (株) 製) : ビス (2, 6-ジ-tert-ブチル-4-メチルフェニル) ペンタエリスリトールホスファイト

(D) 官能基含有シリコーン化合物

- ・KR219 (信越化学工業 (株) 製) : ビニル基メトキシ基含有メチルフェニルシリコーン、動粘度 =  $18 \text{ mm}^2 / \text{s}$

(E) 脂環式エポキシ化合物

- ・セロキサイド 2021P (ダイセル化学工業 (株) 製) : 前記、化学式 (1) 記載の化合物

2. ペレット製造条件

- ・製造条件 [I]

70 mm 径単軸押出成形機 ( $L/D = 36$ 、圧縮比 = 1.6)

シリンダー温度 =  $250^\circ\text{C}$ 、回転数 = 100 rpm

- ・製造条件 [II]

40 mm 径単軸押出成形機 ( $L/D = 28$ 、圧縮比 = 2.7)

シリンダー温度 =  $280^\circ\text{C}$ 、回転数 = 100 rpm

3. 性能評価方法

(1) 分光光線透過率の測定

測定装置 : (株) 島津製作所製 : UV-2400PC、試料板厚み : 2 mm

(2) 全光線透過率

J I S K 7 1 0 5 の試験装置を用い、下記の方法で実施する。  
射出成形試料板〔7 0 m m × 7 0 m m × 厚み 3 m m〕を、出光石油化学（株）製タフロン H R 2 5 0 0（高反射材料）により成形した、射出成形板〔7 0 m m × 7 0 m m × 厚み 3 m m〕2 枚に挟み込んで測定する。なお、試料板を挟んでいない状態（空洞）が全光線透過率 1 0 0 % になるように、照射側からの漏れ光を上記高反射性の板で覆い防いだ。また、入射光の開口は、1 0 m m × 1 m m とした。

(3) 熱変形温度

J I S K 7 2 0 7 に準拠。A 法〔1 . 8 1 M P a〕

(4) 落錘衝撃強度

A S T M D 3 7 6 3 - 8 6 に準拠。

速度：7 m / s、荷重：3 6 . 8 5 N

第1表

	実施例 1	実施例 2	実施例 3	比較例 1	比較例 2
芳香族ポリカーボネート	100	100	100	100	100
PMMA	0.1	0.1	0.2	0	0.1
イルガホス168	0.02	0	0	0.02	0
PEP-36	0	0.05	0.05	0	0.05
KR219	0.1	0.1	0.1	0	0.1
セロキサイド2021P	0.05	0.05	0.05	0	0.05
ペレット製造条件	[I]	[I]	[I]	[II]	[II]
分光光線透過率 (%)					
(X) 320nm	52.6	57.5	59.3	34.7	43.2
(Y) 633nm	90.8	91.0	91.2	89.0	90.0
比: (X) / (Y)	0.58	0.63	0.65	0.39	0.48
全光線透過率 (%)	93.8	94.0	94.1	70.0	92.8
熱変形温度 (°C)	130	130	130	130	130
落錘衝撃強度 (J)	40	41	40	42	40

### 産業上の利用可能性

本発明の芳香族ポリカーボネート樹脂組成物からなる成形品は、実質的に芳香族ポリカーボネート樹脂の物性の低下がなく、光線透過率が向上し、高透明樹脂の代表であるPMMA樹脂の光学グレードに匹敵する透明性を有する。このため、耐熱性、耐衝撃性の観点からPMMA樹脂が使用できなかった分野における光学製品としてその応用分野の拡大が期待できる。

## 請 求 の 範 囲

1. 芳香族ポリカーボネート樹脂 100 質量部および芳香族ポリカーボネート樹脂との屈折率の差が 0.001 以上である他の熱可塑性樹脂 0.001 ~ 1 質量部からなり、厚み 2 mm の試料板で測定した波長 320 nm における分光光線透過率 (X) と波長 633 nm における分光光線透過率 (Y) との比 (X) / (Y) が 0.5 以上である芳香族ポリカーボネート樹脂組成物。
2. 他の熱可塑性樹脂がアクリル系樹脂である請求項 1 記載の芳香族ポリカーボネート樹脂組成物。
3. 芳香族ポリカーボネート樹脂 100 質量部に対して、リン系酸化防止剤を 0.005 ~ 0.2 質量部含有する請求項 1 または 2 に記載の芳香族ポリカーボネート樹脂組成物。
4. リン系酸化防止剤がペンタエリスリトール系である請求項 3 記載の芳香族ポリカーボネート樹脂組成物。
5. リン系酸化防止剤がビス (2, 6-ジ-tert-ブチル-4-メチルフェニル) ペンタエリスリトールホスファイトである請求項 4 記載の芳香族ポリカーボネート樹脂組成物。
6. 芳香族ポリカーボネート樹脂 100 質量部に対して、官能基含有シリコン化合物および／または脂環式エポキシ化合物を 0.01 ~ 2 質量部含有する請求項 1 ~ 5 のいずれかに記載の芳香族ポリカーボネート樹脂組成物。
7. 請求項 1 ~ 6 のいずれかに記載の芳香族ポリカーボネート樹脂組成物からなる透明成形品。
8. 請求項 1 ~ 6 のいずれかに記載の芳香族ポリカーボネート樹脂組成物からなる導光体。

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP01/06866

<b>A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER</b> Int.Cl <sup>7</sup> C08L69/00		
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
<b>B. FIELDS SEARCHED</b> Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) Int.Cl <sup>7</sup> C08L69/00		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched Jitsuyo Shinan Koho 1926-2001 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2001 Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2001 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2001		
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)		
<b>C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT</b>		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 10-73725 A (Idemitsu Petrochem. Co., Ltd.), 17 March, 1998 (17.03.98), column 1, lines 2 to 5 (Family: none)	1-8
<input type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input type="checkbox"/> See patent family annex.		
* Special categories of cited documents: "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "E" earlier document but published on or after the international filing date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art "&" document member of the same patent family	
Date of the actual completion of the international search 26 November, 2001 (26.11.01)	Date of mailing of the international search report 04 December, 2001 (04.12.01)	
Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office	Authorized officer	
Facsimile No.	Telephone No.	



## 国際調査報告

国際出願番号 PCT/JPO1/06866

## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> C08L69/00

## B. 調査を行った分野

## 調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> C08L69/00

## 最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1926-2001年

日本国公開実用新案公報 1971-2001年

日本国登録実用新案公報 1994-2001年

日本国実用新案登録公報 1996-2001年

## 国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	JP 10-73725 A (出光石油化学株式会社) 17. 3月. 1998 (17. 03. 98)、第1欄第2-5行 (ファミリーなし)	1-8

☐ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)

「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&amp;」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

26. 11. 01

国際調査報告の発送日

04.12.01

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

森川 聡



4J

9268

電話番号 03-3581-1101 内線 3456